

# PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 10-168502

(43)Date of publication of application : 23.06.1998

(51)Int.Cl.

B22F 1/00

B22F 3/14

F28F 21/02

F28F 21/08

(21)Application number : 08-329407

(71)Applicant : OSAKA GAS CO LTD

(22)Date of filing : 10.12.1996

(72)Inventor : MATSUI HISAJI

O YOSHIO

MATSUI TAKEO

## (54) COMPOSITE MATERIAL WITH HIGH THERMAL CONDUCTIVITY

### (57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a material of a high thermal conductivity, excellent in thermal conductivity, hydrophilic property, and corrosion resistance and useful for a substitute material for copper, aluminum, etc., conventionally used in a heat radiation plate for protection of an electric circuit and in thermal machinery, such as a heat exchanger and heat pump.

SOLUTION: A mixture is prepared by mixing 100 pts.wt. of metal powder (Fe, Cu, Al, Ag, Be, Mg, W, Ni, Mo, Si, Zn, etc.) and 1-200 pts.wt. of crystalline carbon material (graphite, carbon fiber, carbon black, fullerene, carbon nano-tube, etc.). This mixture is refined under pressurization and compounded. The resultant composite material grains are hot-press-compacted. By this method, the compound material with high thermal conductivity, having a structure in which the metal powder, e.g. of 5 $\mu$ m to 1nm average grain size is dispersed in the crystalline carbon matrix, can be obtained.

## LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

**BEST AVAILABLE COPY**

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平10-168502

(43) 公開日 平成10年(1998) 6月23日

(51) Int.Cl. <sup>6</sup>	識別記号	F I	
B 2 2 F	1/00	B 2 2 F	1/00 E
	3/14	F 2 8 F	21/02
F 2 8 F	21/02		21/08 Z
	21/08	B 2 2 F	3/14 A

審査請求 未請求 請求項の数15 O L (全 5 頁)

(21) 出願番号	特願平8-329407	(71) 出願人	000000284 大阪瓦斯株式会社 大阪府大阪市中央区平野町四丁目1番2号
(22) 出願日	平成8年(1996)12月10日	(72) 発明者	松井 久次 大阪府大阪市中央区平野町四丁目1番2号 大阪瓦斯株式会社内
		(72) 発明者	王 祥生 京都府京都市中京区千生坊城町48-3 千 生坊城第2団地2-1026
		(72) 発明者	松井 丈雄 京都府八幡市八幡北浦8 石清水ビューハ イツC-304
		(74) 代理人	弁理士 三枝 英二 (外4名)

(54) 【発明の名称】 高熱伝導率複合材

(57) 【要約】

【課題】 熱伝導率、親水性及び耐食性に優れ、電気回路保護用の放熱板、熱交換器やヒートポンプ等の熱的機械において、従来使用されている銅やアルミニウム等の代替材料として有用な高熱伝導材を提供する。

【解決手段】 金属粉末 (Fe、Cu、Al、Ag、Be、Mg、W、Ni、Mo、Si、Zn等) と結晶性カーボン材 (黒鉛、炭素繊維、カーボンブラック、フラーレン、カーボンナノチューブ等) とを混合し、加圧微細化・複合化させて得られる複合材粒子をホットプレス成形して結晶性カーボンマトリックスに例えば、平均粒子径5  $\mu$ m ~ 1 nmの金属粉末が分散した組織を有する高熱伝導率複合材を得る。

【特許請求の範囲】

【請求項1】 金属粉末と結晶性カーボン材とを混合し、加圧微細化・複合化させることにより得られる複合材粒子。

【請求項2】 金属粉末と結晶性カーボン材との混合割合が、金属粉末100重量部に対して結晶性カーボン材1～200重量部である請求項1に記載の複合材粒子。

【請求項3】 金属粉末が、Fe、Cu、Al、Ag、Be、Mg、W、Ni、Mo、Si及びZnからなる群から選ばれた金属の粉末又は前記群から選ばれた金属を含む合金の粉末から選ばれた1種類又は2種類以上である請求項1又は2に記載の複合材粒子。

【請求項4】 結晶性カーボン材が、黒鉛、炭素繊維、カーボンブラック、フラーレン又はカーボンナノチューブから選ばれた1種類又は2種類以上である請求項1～3のいずれかに記載の複合材粒子。

【請求項5】 請求項1～4のいずれかに記載の複合材粒子をホットプレス成形することにより得られる高熱伝導率複合材。

【請求項6】 結晶性カーボンマトリックスに平均粒子径が $5\mu\text{m}$ ～ $1\text{nm}$ の金属粉末が分散した組織を有する高熱伝導率複合材。

【請求項7】 請求項1～4のいずれかに記載の複合材粒子をホットプレス成形することにより得られる請求項6に記載の高熱伝導率複合材。

【請求項8】 金属粉末と結晶性カーボン材とを混合し、加圧微細化・複合化させる複合材粒子の製造法。

【請求項9】 金属粉末と結晶性カーボン材との混合割合が、金属粉末100重量部に対して結晶性カーボン材1～200重量部である請求項8に記載の複合材粒子の製造法。

【請求項10】 金属粉末が、Fe、Cu、Al、Ag、Be、Mg、W、Ni、Mo、Si及びZnからなる群から選ばれた金属の粉末又は前記群から選ばれた金属を含む合金の粉末から選ばれた1種類又は2種類以上である請求項8又は9に記載の複合材粒子の製造法。

【請求項11】 結晶性カーボン材が、黒鉛、炭素繊維、カーボンブラック、フラーレン又はカーボンナノチューブから選ばれた1種類又は2種類以上である請求項8～10のいずれかに記載の複合材粒子の製造法。

【請求項12】 金属粉末と結晶性カーボン材との加圧微細化・複合化をボールミルで行なう請求項8～11のいずれかに記載の複合材粒子の製造法。

【請求項13】 金属粉末と結晶性カーボン材との加圧微細化・複合化を不活性ガス雰囲気中 $40^\circ\text{C}$ 以下の低温で行なう請求項8～12のいずれかに記載の複合材粒子の製造法。

【請求項14】 請求項1～4のいずれかに記載の複合材粒子をホットプレス成形する高熱伝導率複合材の製造法。

【請求項15】 ホットプレス成形を不活性雰囲気中 $20\sim 1500^\circ\text{C}$ で行なう請求項14に記載の高熱伝導率複合材の製造法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、高熱伝導率複合材及びその製造法に関する。本発明は、高熱伝導率複合材の製造用材料として好適な複合材粒子及びその製造法に関する。本発明の高熱伝導率複合材は、電気回路保護用の放熱板、熱交換器やヒートポンプ等の熱的機械の高熱伝導性が要求される構築材料として有用である。

【0002】

【従来技術】従来、熱交換、熱伝達の現象を伴う熱的機械又は放熱用の汎用熱伝導材としては、主に鉄、ステンレス鋼、銅及び銅合金、アルミニウム及びアルミニウム合金、ニッケル及びニッケル合金、チタン及びチタン合金、ジルコニウム合金等が使用されている。特に、高熱伝導率が要求される熱交換器等の熱的機械には、常温から高温までの温度範囲にわたって熱伝導率が最も高い銅やアルミニウム等が使用されている。

【0003】しかし、現代社会においては、省エネルギーの技術に対する要望がますます高まっている中、より高い熱伝導率あるいは熱効率を有する熱的機械が求められており、銅やアルミニウム等に比べて、より高い熱伝導率を有する汎用熱伝導材を開発する必要がある。また、銅、アルミニウム等の金属を熱伝導材とする熱的機械においては、媒体と金属の濡れ性や酸性又はアルカリ性媒体による金属の腐食性といった点にも問題がある。

【0004】

【発明が解決しようとする課題】本発明の目的は、電気回路保護用の放熱板、熱交換器やヒートポンプ等の熱的機械において、従来使用されている銅やアルミニウム等の代替材料となり得るように、高熱伝導率を有する高熱伝導材を提供することにある。更に、高い親水性及び耐食性を有する新規高熱伝導材を提供することにある。

【0005】

【課題を解決するための手段】本発明者は、前記の目的に鑑み鋭意検討の結果、銅よりも熱伝導率が高い黒鉛や炭素繊維等の結晶性カーボン材と様々な金属を特定の方法により複合化させることにより、一般に熱的機械に使用されている銅よりも2倍以上高い熱伝導率を有するカーボンと金属の複合材が得られること、特に、結晶性カーボンマトリックスに金属粉末を微細に分散させた複合材が高熱伝導率を有することを見出した。

【0006】本発明は、金属粉末（例えば、Fe、Cu、Al、Ag、Be、Mg、W、Ni、Mo、Si及びZnからなる群から選ばれた金属の粉末又は前記群から選ばれた金属を含む合金の粉末から選ばれた1種類又は2種類以上）と結晶性カーボン材（例えば、黒鉛、炭素繊維、カーボンブラック、フラーレン又はカーボンナ

ノチューブから選ばれた1種類又は2種類以上)とを(例えば、金属粉末100重量部に対して結晶性カーボン材1~200重量部の混合割合で)混合し、加圧微細化・複合化させることにより得られる複合材粒子及びその製造法に関するものである。

【0007】本発明は、当該複合材粒子をホットプレス成形することにより得られる高熱伝導率複合材及びその製造法に関するものである。本発明は、(例えば、前記複合材粒子をホットプレス成形することにより得られ

る)結晶性カーボンマトリックスに数平均粒子径が5 $\mu$ m~1nmの金属粉末が分散した組織を有する高熱伝導率複合材に関するものである。

【0008】

【発明の実施の形態】

#### 複合材粒子

金属粉末としては、Fe、Cu、Al、Ag、Be、Mg、W、Ni、Mo、Si、Zn等の金属単体又はこれらの金属を1種類以上含む合金の粉末を使用することができる。金属粉末は1種類を単独で又は2種類以上を混合して使用することができる。熱伝導率の高い金属粉末、例えば、Cu、Ag、Al、Be等の粉末を使用することにより、より熱伝導率の高い複合材を得ることができる。

【0010】結晶性カーボン材としては、天然黒鉛、人工合成黒鉛、炭素繊維、フラーレン、カーボンナノチューブ、その他の結晶性を有するカーボン材を使用することができる。結晶性カーボン材は粉末又は短繊維として使用することができる。結晶性カーボンは1種類を単独で又は2種類以上を混合して使用することができる。結晶性のよいカーボン材、例えば、天然黒鉛、人工合成黒鉛等を使用することにより、より熱伝導率の高い複合材を得ることができる。

【0011】金属粉末と結晶性カーボン材との混合割合については、特に限定はないが、原料組成物中の金属粉末100重量部に対して結晶性カーボン材1~200重量部、好ましくは10~100重量部とすることにより、熱伝導率が高く且つ成形が容易な複合材を得ることができる。好ましい実施の形態では、複合材粒子は、金属粉末と結晶性カーボン材とが加圧・複合されたカーボン/金属の合金粉末であって、カーボンマトリックス中の金属粉末の平均粒子径が5 $\mu$ m~1nmである。

【0012】金属粉末と結晶性カーボン材との混合材料の加圧微細化・複合化は、いわゆる機械的合金化処理することにより実施することができる。機械的合金化処理は、ボールミルを使用して混合・摩砕することにより実

施することかできる。好ましい実施の形態では、得られる複合材粒子のカーボンマトリックス中の金属粒子の平均粒子径が5 $\mu$ m~1nmとなるように混合材料の加圧微細化・複合化を行なう。

【0013】混合材料の加圧微細化・複合化を不活性ガス雰囲気中で実施することが好ましく、また、40℃以下、好ましくは30℃以下、特に好ましくは0℃以下の低温で実施することが好ましい。混合材料の加圧微細化・複合化を不活性ガス雰囲気中30℃以下の低温で実施することにより、カーボンマトリックス中に金属粒子が均一に分散した複合材を効率よく製造することができ、特に、不活性ガス雰囲気中0℃以下の低温で、例えばアルゴンガス雰囲気中、液体窒素で冷却しながら実施することにより、一層微細な複合材粒子を製造することができ、高熱伝導率複合材を製造するために都合がよい。

【0014】金属粉末と結晶性カーボン材とを適量配合して混在させ、これら混合粉末を加圧すれば、微細混合が進行し、各粒子の均一性が高まると共に、各粒子の有する性質に機能性が付加され、より高い性能と機能性を有する合金粒子、即ち、複合材粒子が生成する。特に加圧を、高エネルギーボールミル等を使用して、いわゆる機械的合金化処理により実施すると、各粒子は加工され扁平状になって新生面を露出し、この新生面どうしが接触され合体するようになって、このことが繰り返され、衝突・圧縮衝撃力により微細化と均質化が一層進行し、ミクロン以下nmオーダーの微細構造を有する複合材粒子が生成する。

#### 【0015】高熱伝導率複合材

複合材粒子を成形加工することにより、高熱伝導率複合材を製造することができる。特に、本発明の複合材粒子をホットプレス成形、即ち、加熱・加圧成形することにより優れた特性を有する高熱伝導率複合材を製造することができる。複合材粒子のホットプレス成形は、不活性ガス雰囲気中20~1500℃で実施することができる。

【0016】複合材粒子をホットプレス成形することにより、高熱伝導率複合材を得る過程において、ホットプレス成形を不活性ガス雰囲気中、適切な温度下で行うことが重要であり、成形圧力が高ければ高いほど、より緻密な複合材を製造することができ、熱伝導率や機械強度等の特性が良好な高熱伝導率複合材を得ることができる。例えば、銅パウダーと天然黒鉛パウダーから製造した銅/黒鉛合金パウダーを、アルゴン雰囲気中800℃で10000kg/cm<sup>2</sup>の圧力で成形することにより銅板の2、3倍の熱伝導率を有する高熱伝導率複合材を製造することができる。

#### 【0017】

【実施例】以下に本発明の実施例と比較例を示し、本発明の特徴とするところをより一層明確にする。

#### 【0018】実施例1

銅パウダー(粒子径100 $\mu$ m、純度99.8%)90

重量部に天然黒鉛（パウダー状、純度99%）10重量部を配合し、混合する。これら混合粉末と100重量部のステンレスボールを内容積200mlのステンレス銅容器に仕込んで、振動ボールミルによってアルゴンガス気流中、液体窒素で冷却しながら12時間、いわゆる機械的合金化処理を行った。得られた合金粒子を800℃、10000kg/cm<sup>2</sup>の圧力で空気を遮断した状態で円板状にホットプレス成型した。得られた円板状サンプルを室温でレーザーフラッシュ法による熱伝導率の測定を行った。その結果を表1に示す。

#### 【0019】実施例2

銅パウダー（粒子径100μm、純度99.8%）70重量部に天然黒鉛（パウダー状、純度99%）30重量部を配合し、混合する。これら混合粉末と100重量部のステンレスボールを内容積200mlのステンレス銅容器に仕込んで、実施例1と同様な条件で、機械的合金化処理を行った。得られた円板状サンプルを室温でレーザーフラッシュ法による熱伝導率の測定を行った。その結果を表1に示す。

#### 【0020】実施例3

銅パウダー（粒子径100μm、純度99.8%）50重量部に天然黒鉛（パウダー状、純度99%）50重量部を配合し、混合する。これら混合粉末と100重量部のステンレスボールを内容積200mlのステンレス銅容器に仕込んで、実施例1と同様な条件で、機械的合金化処理を行った。得られた円板状サンプルを室温でレーザーフラッシュ法による熱伝導率の測定を行った。その結果を表1に示す。

#### 【0021】実施例4

アルミニウム粉末（粒子径200μm、純度99.9%）70重量部に天然黒鉛（パウダー状、純度99%）30重量部を配合し、混合する。これら混合粉末と100重量部のステンレスボールを内容積200mlのステンレス銅容器に仕込んで、実施例1と同様な条件で、機械的合金化処理を行った。得られた円板状サンプルを室温でレーザーフラッシュ法による熱伝導率の測定を行った。その結果を表1に示す。

#### 【0022】実施例5

鉄粉末（粒子径20～60mesh、純度99.9%）70重量部に天然黒鉛（パウダー状、純度99%）30重量部を配合し、混合する。これら混合粉末と100重量部のステンレスボールを内容積200mlのステンレス銅容器に仕込んで、実施例1と同様な条件で、機械的合金化処理を行った。得られた円板状サンプルを室温でレーザーフラッシュ法による熱伝導率の測定を行った。その結果を表1に示す。

#### 【0023】実施例6

ニッケルパウダー（Type237、純度99.0%）70重量部に人造黒鉛（石油コークスから製造されたもの、パウダー状、純度99%）30重量部を配合し、混

合する。これら混合粉末と100重量部のステンレスボールを内容積200mlのステンレス銅容器に仕込んで、実施例1と同様な条件で、機械的合金化処理を行った。得られた円板状サンプルを室温でレーザーフラッシュ法による熱伝導率の測定を行った。その結果を表1に示す。

#### 【0024】比較例1

100重量部の銅パウダー（粒子径100μm、純度99.8%）と100重量部のステンレスボールを内容積200mlのステンレス銅容器に仕込んで、振動ボールミルによってアルゴンガス気流中、液体窒素で冷却しながら12時間、いわゆる機械的合金化処理を行った。得られた合金粒子を800℃、10000kg/cm<sup>2</sup>の圧力で空気を遮断した状態で円板状にホットプレス成型した。得られた円板状サンプルを室温でレーザーフラッシュ法による熱伝導率の測定を行った。その結果を表1に示す。

#### 【0025】比較例2

100重量部のアルミニウム粉末（粒子径200μm、純度99.9%）と100重量部のステンレスボールを内容積200mlのステンレス銅容器に仕込んで、比較例1と同様な条件で機械的合金化処理を行った。得られた合金粒子を800℃、10000kg/cm<sup>2</sup>の圧力で空気を遮断した状態で円板状にホットプレス成型した。得られた円板状サンプルを室温でレーザーフラッシュ法による熱伝導率の測定を行った。その結果を表1に示す。

#### 【0026】比較例3

100重量部の鉄粉末（粒子径20～60mesh、純度99.9%）と100重量部のステンレスボールを内容積200mlのステンレス銅容器に仕込んで、比較例1と同様な条件で機械的合金化処理を行った。得られた合金粒子を800℃、10000kg/cm<sup>2</sup>の圧力で空気を遮断した状態で円板状にホットプレス成型した。得られた円板状サンプルを室温でレーザーフラッシュ法による熱伝導率の測定を行った。その結果を表1に示す。

#### 【0027】比較例4

100重量部のニッケルパウダー（Type237、純度99.0%）と100重量部のステンレスボールを内容積200mlのステンレス銅容器に仕込んで、比較例1と同様な条件で機械的合金化処理を行った。得られた合金粒子を800℃、10000kg/cm<sup>2</sup>の圧力で空気を遮断した状態で円板状にホットプレス成型した。得られた円板状サンプルを室温でレーザーフラッシュ法による熱伝導率の測定を行った。その結果を表1に示す。

#### 【0028】

【表1】

表 1

実施例	組 成	熱伝導率( $\text{W}/\text{m}^{\circ}\text{K}$ )
実施例1	天然黒鉛／銅＝10／90	526
実施例2	天然黒鉛／銅＝30／70	799
実施例3	天然黒鉛／銅＝50／50	963
実施例4	天然黒鉛／アルミニウム＝30／70	493
実施例5	天然黒鉛／鉄＝30／70	149
実施例6	人造黒鉛／ニッケル＝30／70	173
比較例1	銅＝100%	391
比較例2	アルミニウム＝100%	235
比較例3	鉄＝100%	78.5
比較例4	ニッケル＝100%	88.6

【0029】

【発明の効果】本発明によれば、単なる金属より2倍以上と高い熱伝導率複合材が得られる。本発明の高熱伝導率複合材は、耐腐食性や親水性や機械強度などの特性にも優れている。本発明の高熱伝導率複合材は、高熱伝

導率を有し、しかも、様々な形状に加工することができるので、電気回路保護用の散熱板、熱交換器やヒートポンプ等の熱的機械の高熱伝導性が要求される構築材料として有用である。

This Page is inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record

## **BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☐ FADED TEXT OR DRAWING
- ☒ BLURED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☐ COLORED OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☐ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☐ REPERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: \_\_\_\_\_

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning documents *will not* correct images  
problems checked, please do not report the  
problems to the IFW Image Problem Mailbox**